

Магнитные фазовые диаграммы ферримагнетиков с двумя магнитно-нестабильными подсистемами

© Н.П. Колмакова, Р.З. Левитин*, А.С. Маркосян*, М.Ю. Некрасова

Брянский государственный технический университет,
241035 Брянск, Россия

*Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 14 июля 1997 г.)

В приближении молекулярного поля построены магнитные фазовые диаграммы и кривые намагничивания ферримагнетиков с двумя магнитно-нестабильными подсистемами. Разнообразные последовательности различных по своей природе фазовых переходов — первого рода (метамагнитных) и второго рода (через неколлинеарную фазу) — реализуются в процессе намагничивания таких ферримагнетиков. Кривые намагничивания проанализированы в зависимости от соотношения параметров двух подсистем: намагниченностей подрешеток в слабом и сильном состояниях, критических полей и величины обменного взаимодействия между подрешетками.

В двухподрешеточном ферримагнетике со стабильными подрешетками внешнее магнитное поле индуцирует переход из ферримагнитного состояния с антипараллельными магнитными моментами в ферромагнитное состояние с параллельными магнитными моментами путем двух фазовых переходов второго рода через неколлинеарную фазу (см., например, [1]). Если одна из магнитных подсистем (подрешеток) ферримагнетика проявляет магнитную нестабильность, т.е. претерпевает метамагнитный переход из слабого в сильное магнитное состояние при приложении магнитного поля, в нем могут реализоваться различные последовательности метамагнитных переходов и неколлинеарных фаз. Магнитные фазовые диаграммы таких ферримагнетиков теоретически рассмотрены в работе [2], где процесс намагничивания рассчитан в зависимости от параметров системы: намагниченностей стабильной и нестабильной (в сильном и слабом состояниях) подрешеток, поля метамагнитного перехода и величины межподрешеточного обменного взаимодействия. Экспериментально кривые намагничивания такого рода наблюдались в работах [3,4] на $4f-3d$ -интерметаллических соединениях типа $Y_{1-t}R_t(\text{Co}_{1-x}\text{Al}_x)_2$, где R — тяжелая "редкая земля". В этих соединениях нестабильной является зонная d -подсистема, в которой в магнитном поле происходит метамагнитный переход из слабомагнитного в сильномагнитное состояние, а редкоземельная подсистема рассматривается как стабильная. В соответствии с развитой в [2] теорией в ряде этих соединений были обнаружены, например, два метамагнитных перехода с неколлинеарной фазой между ними [3,4].

В последнее время, однако, выяснилось, что в ряде случаев возможна и более сложная ситуация, при которой магнитно-нестабильной является и вторая магнитная подсистема. Так, например, недавние исследования магнитных свойств интерметаллида TmCo_2 показали, что в этом соединении Tm -подсистема также является магнитно-нестабильной: в зависимости от стехиометрии

магнитное состояние этой подсистемы может быть различным [5]. Природа этой нестабильности до настоящего времени невыяснена. Она, в частности, может быть обусловлена явлением кроссовера в Tm -подсистеме, которое часто наблюдается в соединениях с редкоземельными ионами (см., например, [6]). Ферримагнетики, в которых магнитную нестабильность проявляют обе подрешетки, представляют новый класс магнитных материалов, в которых кривые намагничивания и магнитные фазовые диаграммы еще более усложнены по сравнению с рассмотренными в [2]. Хотя сведения об экспериментальном исследовании ферримагнетиков с двумя нестабильными подсистемами отсутствуют, такие соединения могут встречаться среди $f-d$ -интерметаллидов, в которых зонная d -подсистема является метамагнитной, а редкоземельная обнаруживает явление кроссовера. Кроме того, такие ферримагнетики могут быть обнаружены в $d-d$ -интерметаллидах, в которых имеются две магнитно-нестабильные подрешетки с отрицательным межподрешеточным обменным взаимодействием.

В данной работе теоретически рассмотрены магнитные фазовые диаграммы и кривые намагничивания двухподрешеточного ферримагнетика с двумя магнитно-нестабильными подрешетками, в которых в поле происходит переход первого рода из слабомагнитного в сильномагнитное состояние. Рассмотрение проведено в модели эффективного поля в обменном приближении, причем предполагается для простоты, что восприимчивость отсутствует и намагниченности обеих подсистем меняются скачком в полях метамагнитных переходов.

1. Модель

Рассмотрим двухподрешеточный ферримагнетик, обе магнитные подрешетки ($i = 1, 2$) которого магнитно-нестабильны, т.е. при критическом значении магнитного поля H_i переходят из слабомагнитного (w) с намагниченностью m_i в сильномагнитное (s) состояние с

намагниченностью M_i

$$M_i = m_i, \quad H < H_i; \quad M_i = M_i, \quad H \geq H_i. \quad (1)$$

Мы рассчитаем магнитные фазовые диаграммы и кривые намагничивания такого ферримагнетика в приближении молекулярного поля, в котором в состоянии термодинамического равновесия магнитные моменты подрешеток считаются направленными вдоль действующих на них эффективных полей. Будем анализировать знаки и величины этих эффективных полей и выбирать состояния, соответствующие минимальным значениям термодинамического потенциала при заданном значении внешнего магнитного поля.

В простейшей модели термодинамический потенциал ферримагнетика с отрицательным обменным взаимодействием между подрешетками с магнитными моментами \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 , характеризуемым обменным параметром λ_{12} , может быть записан в виде

$$G(\mathbf{H}, T) = F_1 + F_2 - \mathbf{H}(\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2) + \lambda \mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2, \quad (2)$$

$$\lambda = |\lambda_{12}| (\lambda_{12} < 0).$$

Здесь F_i ($i = 1, 2$) — термодинамический потенциал i -й нестабильной подсистемы, который различается для сильного и слабого магнитных состояний. В этой простой модели связь между F_i в s - и w -состояниях можно определить соотношением

$$F_{is} = F_{iw} + (M_i - m_i)H_i. \quad (3)$$

При расчетах нас будет интересовать только разница величин термодинамических потенциалов для двух состояний каждой нестабильной подсистемы.

Введем следующую номенклатуру обозначений для фаз, реализующихся в данном ферримагнетике. Фазы, которые возможны в обычном двухподрешеточном ферримагнетике, различаются взаимной ориентацией магнитных моментов подрешеток. Мы обозначим их следующим образом: ферримагнитная фаза (с антипараллельной ориентацией магнитных моментов) — A , ферромагнитная — F , неколлинеарная — N . Из-за существования слабого и сильного магнитных состояний для каждой из подрешеток в рассматриваемом ферримагнетике число фаз увеличивается в 4 раза, и мы будем обозначать их, добавляя к обозначению фазы W , если обе подсистемы находятся в слабомагнитном состоянии; W_i ($i = 1, 2$), если только одна i -я подсистема находится в слабомагнитном состоянии; S , если обе подсистемы находятся в сильномагнитном состоянии. Таким образом, например, $AW1$ соответствует ферримагнитной фазе с первой подсистемой в слабомагнитном состоянии, а второй — в сильномагнитном.

В зависимости от величины межподрешеточного обменного взаимодействия и соотношения параметров подсистем исходным состоянием при $H = 0$ будет одно из четырех возможных ферримагнитных: AW , $AW1$, $AW2$, AS . Введем характерные значения обменного параметра λ ,

которые разделяют области различных исходных состояний,

$$\lambda_i = \frac{(M_1 - m_1)H_1 + (M_2 - m_2)H_2}{M_1 M_2 - m_1 m_2}, \quad (4)$$

$$\lambda_2 = \frac{H_2}{m_1}, \quad \lambda_3 = \frac{H_1}{m_2}, \quad \lambda_4 = \frac{H_1}{M_2}, \quad \lambda_5 = \frac{H_2}{M_1}.$$

Далее выписаны условия существования каждого из ферримагнитных состояний при $H = 0$, полученные с использованием (1), (3).

Для AW

$$\begin{aligned} \lambda < \lambda_1, & \text{ если } \lambda_1 < \lambda_2, \lambda_3, \\ \lambda < \lambda_2, & \text{ если } \lambda_2 < \lambda_1, \lambda_3, \\ \lambda < \lambda_3, & \text{ если } \lambda_3 < \lambda_1, \lambda_2, \end{aligned} \quad (5a)$$

для $AW1$

$$\lambda_2 < \lambda < \lambda_4, \quad (5b)$$

для $AW2$

$$\lambda_3 < \lambda < \lambda_5, \quad (5c)$$

для AS

$$\begin{aligned} \lambda > \lambda_1, & \text{ если } \lambda_1 < \lambda_2, \lambda_3, \\ \lambda > \lambda_4, & \text{ если } \lambda_2 < \lambda_1, \lambda_3, \\ \lambda > \lambda_5, & \text{ если } \lambda_3 < \lambda_1, \lambda_2. \end{aligned} \quad (5d)$$

Процесс намагничивания ферримагнетика из любого из этих исходных состояний может происходить разными способами в зависимости от конкретного соотношения параметров обеих подсистем. В том числе может реализоваться магнитная фазовая диаграмма, включающая последовательность всех двенадцати возможных фаз, перечисленных выше [7]. Этот интересный случай мы рассмотрим в следующем разделе: здесь же обсудим лишь некоторые общие закономерности, характерные для процессов намагничивания.

Фазовые переходы между возможными состояниями системы могут быть как первого (метамагнитные переходы), так и второго рода (переходы в неколлинеарную фазу). Критические поля, в которых происходят изменения магнитного состояния системы, соответствуют сравнению термодинамических потенциалов фаз. В рассматриваемой простейшей модели аналитические выражения для всех критических полей, в которых происходят изменения магнитного состояния системы, могут быть получены достаточно просто, и по этой причине в статье приведены лишь некоторые из них. Выбирая для определенности и без ограничения общности $m_2 > m_1$ и варьируя соотношения всех остальных параметров, можно всего реализовать 32 различных фазовых перехода. Для фазовых переходов первого рода между коллинеарными фазами критические поля линейны по обменному параметру λ . Например, для фазового перехода $FW2 \leftrightarrow AS$

$$H_{FW2 \leftrightarrow AS} = \frac{(M_2 - m_2)H_2 - \lambda M_1(M_2 + m_2)}{|M_1 - M_2| - M_1 - m_2}. \quad (6)$$

Критические поля фазовых переходов первого рода между неколлинеарной фазой и ферромагнитной (или ферромагнитной) фазой являются нелинейными функциями λ . Например,

$$H_{NW2 \leftrightarrow AW} = \lambda(m_2 - m_1) - \left\{ \lambda(M_1 - m_1) \times [2H_1 - \lambda M_1 - \lambda m_1] \right\}^{1/2}. \quad (7)$$

Обратим внимание на то, что фазовые переходы второго рода реализуются только между неколлинеарной и ферромагнитной (или ферримагнитной) фазами и происходят без изменения состояния каждой из подсистем. Критические поля равны

$$H_{Ai \leftrightarrow Ni} = \lambda |M_{2i} - M_{1i}|, \quad H_{Ni \leftrightarrow Fi} = \lambda (M_{1i} + M_{2i}),$$

$$i = W, W1, W2, S,$$

$$M_i = m_i, \quad i = W; \quad M_i = M_i, \quad i = W1, W2, S. \quad (8)$$

2. Случай максимального количества фазовых переходов

Если магнитные моменты второй подсистемы в обоих состояниях настолько велики, что удовлетворяют условию

$$m_2 > M_1, \quad M_2 > m_2 + 2M_1, \quad (9)$$

и, кроме того,

$$H_2 > H_1 + \lambda(m_2 - m_1), \quad (10)$$

при значениях обменного параметра λ , удовлетворяющего условию (5с) для существования исходного состояния AW2 (первая подсистема в сильномагнитном состоянии, вторая — в слабом), могут реализоваться весьма любопытные кривые намагничивания, когда дважды происходит перемагничивание первой нестабильной подсистемы: первый раз, когда роль стабильной подсистемы выполняет вторая подсистема с намагниченностью m_2 , и второй раз, когда снова роль стабильной подсистемы выполняет вторая подсистема, но уже с намагниченностью M_2 .

Для значений λ , удовлетворяющих условию

$$\lambda_6 > \lambda > \lambda_7, \quad \lambda_6 = H_1/M_1, \quad \lambda_7 = 2H_1/(M_1 + m_1), \quad (11)$$

кривая намагничивания изображена на рис. 1. Видно, что она характеризуется пятью фазовыми переходами первого рода и шестью неколлинеарными фазами. Процесс намагничивания до состояния FW2 происходит по сценарию AW2 → NW2 → AW → NW → FW → NW2 → FW2, затем через фазовый переход первого рода система попадает в состояние AS, и снова происходит процесс перемагничивания первой подсистемы по сценарию AS → NS → AW1 → NW1 → FW1 → NS → FS при второй стабильной подсистеме с намагниченностью M_2 до конечного состояния FS. Характерной особенностью

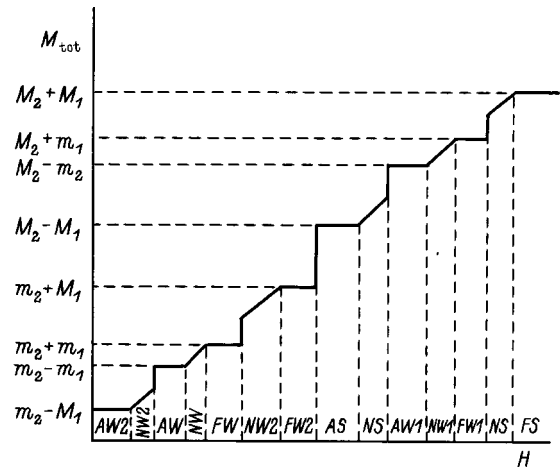


Рис. 1. Схематическая кривая намагничивания ферримагнетика с двумя магнитно-нестабильными подсистемами, удовлетворяющими условиям (9) и (10), при $\lambda_6 < \lambda < \lambda_7$.

кривой намагничивания являются срывы из неколлинеарных фаз NW2 и NS в "чужие" ферримагнитные фазы. Конфигурации магнитных моментов при этом определяются известными формулами для углов (см., например, [8]) в полях сравнения термодинамических потенциалов.

Если значения обменного параметра λ вместо условия (11) удовлетворяют условию

$$\lambda_3 < \lambda < \lambda_6, \quad (12)$$

то кривая намагничивания отличается от изображенной на рис. 1 возникновением не шести, а только двух неколлинеарных фаз: NW и NW1.

Полная магнитная фазовая диаграмма в координатах (H, λ) для случая, когда исходная кривая намагничивания второй подсистемы характеризуется большими величинами намагниченностей и критического поля, чем первой подсистемы (см. (9), (10)), приведена на рис. 2. Отметим, что поле фазового перехода $H_{FW2 \leftrightarrow AS}$ является линейной убывающей функцией λ (см. (6)). В зависимости от конкретного соотношения параметров подсистем значение обменного параметра λ_8

$$\lambda_8 = \frac{(M_2 - m_2)H_2}{2M_1(M_2 - M_1 - m_2) + m_2(M_2 - m_2)}, \quad (13)$$

при котором $H_{FW2 \leftrightarrow AS} = H_{NW2 \leftrightarrow FW2}$, может быть больше (как на рис. 2) и меньше, чем λ_7 . Если $\lambda_8 < \lambda_7$, то в интервале значений обменного параметра $\lambda_8 < \lambda < \lambda_7$ кривая намагничивания будет отличаться от изображенной на рис. 1 отсутствием фазы FW2 и наличием фазового перехода первого рода NW2 ↔ AS. Из рис. 2 видно, что малые ($\lambda < \lambda_3$) и большие ($\lambda > \lambda_7$) значения обменного параметра λ соответствуют ситуациям со значительно более простыми последовательностями магнитных состояний системы.

3. Другой пример магнитной фазовой диаграммы

Когда для параметров подсистем условия (9), (10) не выполняются, магнитные фазовые диаграммы имеют более простой вид. При гораздо менее жестких, чем (9), (10), соотношениях параметров, например

$$M_2 > M_1, \quad H_2 < H_1, \quad \lambda_2 < \lambda_4 \quad (14)$$

(напомним, что для определенности выбрано $m_2 > m_1$), магнитная фазовая диаграмма приведена на рис. 3. Кривые намагничивания для соединений с такой магнитной фазовой диаграммой будут гораздо проще, чем изображенная на рис. 1. Однако из рис. 3 видно, что разным величинам обменного параметра λ соответствуют различные последовательности фазовых переходов, разных по своей природе. Например, после неколлинеарной фазы могут следовать два фазовых перехода первого рода, либо неколлинеарная фаза может располагаться между фазовыми переходами первого рода. Таким образом, анализ кривых намагничивания дает возможность, оценить величину обменного взаимодействия между подрешетками ферримагнетика.

Рассматривая различные соотношения параметров (m_i , M_i и H_i) подсистем, в том числе не удовлетворяющие условиям (9), (10), (14), можно построить все возможные магнитные фазовые диаграммы. В координатах (H , λ) их число составляет двенадцать. Магнитные фазовые диаграммы позволяют построить кривые намагничивания,

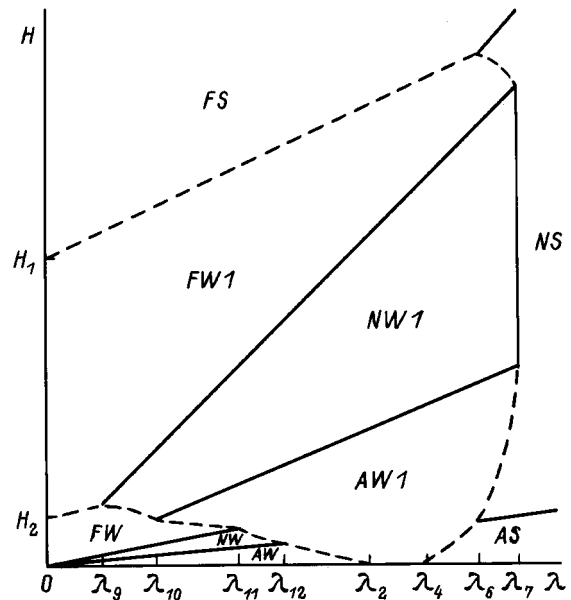


Рис. 3. То же, что на рис. 2, в случае условия (14). $\lambda_9 = \frac{H_2}{M_2}$, $\lambda_{10} = \frac{(M_2 - m_2)H_2}{(M_2 - m_2)(M_2 - 2m_1) + 2m_1^2}$, $\lambda_{11} = \frac{(M_2 - m_2)H_2}{(M_2 - m_2)(2m_1 + m_2) - 2m_1^2}$, $\lambda_{12} = \frac{H_2}{m_2}$.

которые для данной магнитной фазовой диаграммы имеют разный вид в различных интервалах значений обменного параметра λ , как это было продемонстрировано на рис. 2, 3.

Таким образом, в данной работе в модели эффективного поля рассчитаны магнитные фазовые диаграммы ферримагнетика с двумя магнитно-нестабильными подрешетками. Использование простейшей модели позволило разобраться в возможных топологиях фазовых диаграмм и их зависимостях от основных параметров подсистем, а также сделало возможным выделить ситуацию с наибольшим количеством фазовых переходов. При усовершенствовании теоретического подхода необходимо учесть наличие магнитной восприимчивости, размазанность метамагнитных переходов по полю, влияние анизотропии, температурные эффекты и т.д., что и предполагается сделать в дальнейшем. Специального изучения требует вопрос о том, какие именно последовательности фазовых переходов и в каких реальных объектах можно наблюдать. Как уже отмечалось, можно предполагать, что некоторые фазы Лавеса на основе $TmCo_2$ являются ферримагнетиками рассмотренного вида в случае кроссовера в редкоземельной подсистеме. В следующих наших работах будет рассмотрен вопрос о том, возможно ли пересечение нижних энергетических уровней ионов тулия, находящихся в соединениях типа RCo_2 в позициях с кубической симметрией окружения, а также будут исследованы сопутствующие такому пересечению скачки намагниченности. В случае выявления параметров тулиевой подсистемы станет ясно, какая из рассмотренных нами фазовых диаграмм является актуальной. Необходимо также поиск других соединений, которые могут являть-

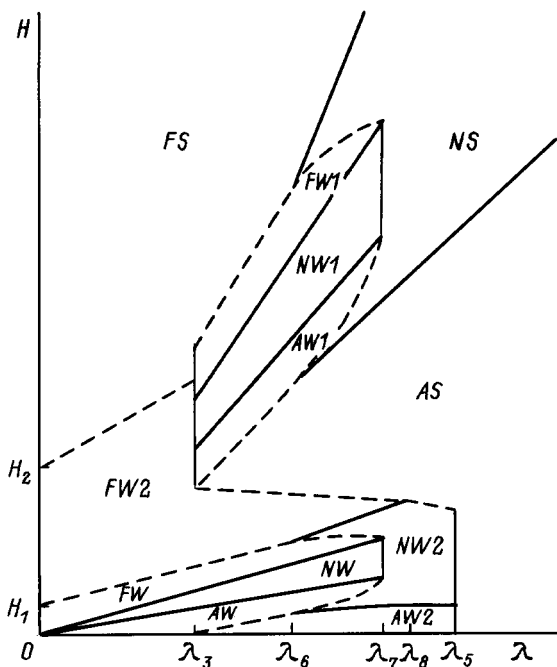


Рис. 2. Магнитная фазовая диаграмма ферримагнетика с двумя магнитно-нестабильными подсистемами, удовлетворяющими условиям (9) и (10). Фазовые переходы первого и второго рода изображены штриховыми и сплошными линиями соответственно.

ся ферромагнетиками с двумя магнитно-нестабильными подсистемами; в частности, такие объекты могут быть найдены в тройных редкоземельных интерметаллидах с переходными металлами либо в некоторых интерметаллидах с марганцем.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (РФФИ) (проект 96-02-16373) и INTAS–РФФИ (проект 96-IN-RU-641).

Список литературы

- [1] С.В. Тябликов. Методы квантовой теории магнетизма. Наука, М. (1965). С. 196.
- [2] I.S. Dubenko, N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin, A.S. Markosyan, A.K. Zvezdin. *J. Magn. Magn. Mater.* **153**, 2, 207 (1996).
- [3] P.E. Brommer, I.S. Dubenko, J.J.M. Franse, F. Kayzel, N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin, A.S. Markosyan, A.Yu. Sokolov. *Phys. Lett.* **A189**, 6, 253 (1994).
- [4] P.E. Brommer, I.S. Dubenko, J.J.M. Franse, F. Kayzel, N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin, A.S. Markosyan, A.Yu. Sokolov. *Physica* **B211**, 2, 155 (1995).
- [5] I.S. Dubenko, I.V. Golosovsky, E. Gratz, R.Z. Levitin, A.S. Markosyan, I. Mirebeau. *J. Magn. Magn. Mater.* **150**, 3, 304 (1995).
- [6] P.E. Brommer, I.S. Dubenko, J.J.M. Franse, R.Z. Levitin, A.S. Markosyan, A.Yu. Sokolov. *Physica* **B183**, 3, 363 (1993).
- [7] N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin. In: Abstracts of MMM'96. Atlanta (1996). P. BU-11.
- [8] К.П. Белов, А.К. Звездин, А.М. Кадомцева, Р.З. Левитин. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. Наука, М. (1979). С. 211.